

Vladimíra MICHALCOVÁ<sup>1</sup>, Marian BOJKO<sup>2</sup>, Milada KOZUBKOVÁ<sup>3</sup>

MATEMATICKÉ MODELOVÁNÍ NÍZKOTEPLTNÍ OXIDACE UHLÍ  
JEDNOFÁZOVÝM A DVOUFÁZOVÝM MODELEM

MATHEMATICAL MODELING THE LOW-TEMPERATURE OXIDATION OF COAL  
WITH SINGLE-PHASE AND TWO-PHASE MODELS

**Abstrakt**

V článku je řešena problematika nízkoteplotní oxidace uhlí v adiabatických podmínkách pomocí komerčního CFD softwaru FLUENT. Za tímto účelem byl vytvořen jednofázový a dvoufázový matematický 2D model. Pro stanovení rychlosti oxidace uhlí bylo využito experimentálního měření se vzorkem polského uhlí.

**Klíčová slova**

Matematické modelování, CFD, nízkoteplotní oxidace uhlí.

**Abstract**

Commercial CFD software FLUENT was used to study the oxidation process of coal in adiabatic conditions. Two dimensional, single-phase and two-phase models have been developed. The behavior of the coal to oxygen was modeled using the result of the laboratory-scale experiment with Polish bituminous coal.

**Keywords**

Mathematical modeling, CFD, low-oxidation of coal.

## 1 ÚVOD

V této práci je popsána dílčí část úkolu, který řeší matematické modelování nízkoteplotní oxidace uhlí v uhelných skládkách a odvalech. Důležitým faktorem tohoto děje je vliv atmosférických podmínek, proto byla práce na projektu rozdělena do dvou samostatných částí, jejichž cílem bylo vypracovat metodiku pro finální komplexní řešení.

První část byla zaměřena na tvorbu matematického modelu proudění větru v reálné atmosféře s uvažováním změny rychlosti i směru větru tak, aby následně bylo možné atmosférické podmínky zahrnout do řešení oxidace uhlí v uhelných skládkách. Výsledky této části projektu publikované v [1] umožňují objektivně stanovit okrajové podmínky na povrchu skládky uhlí při modelování procesu chemických reakcí. Druhým samostatným úkolem bylo připravit matematický model simulující

---

<sup>1</sup> Ing. Vladimíra Michalcová, Ph.D., Katedra stavební mechaniky, Fakulta stavební, VŠB-Technická univerzita Ostrava, Ludvíka Podéště 1875/17, 708 33 Ostrava - Poruba, tel.: (+420) 597 321 326, e-mail: vladimira.michalcova@vsb.cz.

<sup>2</sup> Ing. Marian Bojko, Ph.D., Katedra hydromechaniky a hydraulických zařízení, Fakulta strojní, VŠB-Technická univerzita Ostrava, tř.17.listopadu 15, 708 33 Ostrava - Poruba, tel.: (+420) 597 324 385, e-mail: marian.bojko@vsb.cz.

<sup>3</sup> Prof. RNDr. Milada Kozubková, CSc., Katedra hydromechaniky a hydraulických zařízení, Fakulta strojní, VŠB-Technická univerzita Ostrava, tř.17.listopadu 15, 708 33 Ostrava - Poruba, tel.: (+420) 597 323 342, e-mail: milada.kozubkova@vsb.cz.

rozvoj nízkoteplotní oxidace uhlí v závislosti na okrajových podmínkách a právě tomuto je věnován tento článek.

## 2 POPIS ÚLOHY

Matematické modelování nízkoteplotní oxidace uhlí představuje složitou problematiku z hlediska definice odpovídajícího modelu charakterizujícího spotřebu kyslíku, produkci plyných zplodin, tvorbu pevných oxidačních produktů a uvolňování tepla. V této práci jsou definovány dva matematické modely nízkoteplotní oxidace uhlí řešené metodou konečných objemů pomocí programu ANSYS Fluent 12.1. První představuje jednofázový matematický model laminárního proudění plynů porézním prostředím. Jako druhý byl použit dvoufázový Eulerův matematický model, kde jsou definovány 2 fáze o různém skupenství. V našem případě se jedná o plynnou a pevnou fázi. Oba modely jsou doplněny o zdrojové členy definující produkci a spotřebu plyných složek a množství uvolněného tepla. Rychlostní konstanta nízkoteplotní oxidace je popsána Arrheniovou rovnicí v kapitole 3.1. Hodnoty aktivační energie a pre-exponenciální faktor v Arrheniově rovnici byly získány z měření na experimentálním zařízení metodou adiabatické oxidace [2]. K definování stechiometrické rovnice a reakčního tepla v kapitole 3.2. bylo využito zkušeností z experimentálního měření rozvoje nízkoteplotní oxidace [3]. Výsledky numerické simulace definovaných matematických modelů byly porovnány s experimentálním měřením polského vzorku uhlí [2].

## 3 FYZIKÁLNÍ EXPERIMENT

K experimentálnímu měření byl použit vzorek uhlí z dolu „Borynia“ v Polsku. Experimentální zařízení pro získání parametrů dynamiky uvolňovaného tepla v průběhu nízkoteplotní oxidace uhlí je založeno na principu adiabatického kalorimetru. Hlavním prvkem zařízení je reaktor o průměru  $d = 70\text{mm}$  a výšce  $h = 120\text{mm}$  umístěný v olejové lázni, která je automaticky zahřívána na teplotu uvnitř reaktoru, řízenou termostatem zajišťujícím adiabatický proces. Reaktor je vyplněný uhlím o zrnitosti  $0,5\text{mm}$  a celkové hmotnosti  $0,52\text{kg}$ . Do reaktoru je přiváděn vzduch o teplotě, která je rovna lázni termostatu. V důsledku uvolňovaného tepla oxidací kyslíku s uhlím dochází k automatickému vzrůstu teploty reaktoru. Podrobný popis experimentálního zařízení včetně schématu je popsán v [2].

### 3.1 Rychlost nízkoteplotní oxidace uhlí

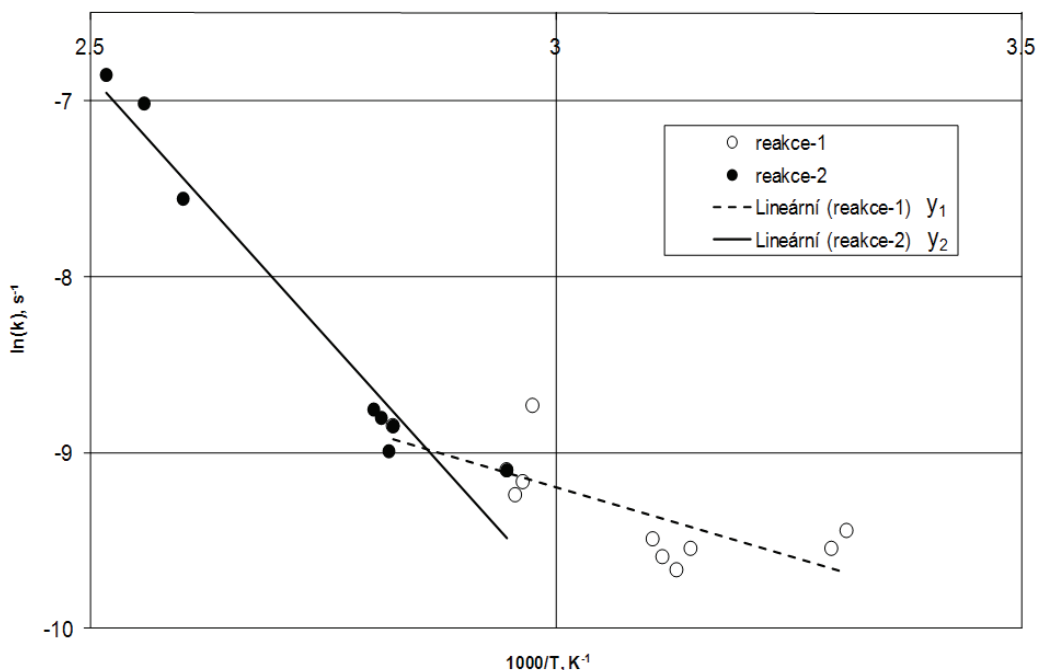
Během procesu nízkoteplotní oxidace byl vyhodnocen nárůst teploty uhlí i spotřeba kyslíku v závislosti na čase a hodnota rychlostní konstanty  $k$  [ $\text{s}^{-1}$ ] v závislosti na teplotě. Rychlostní konstanta definuje rychlost chemické reakce a vychází z Arrheniové rovnice:

$$k = A \cdot e^{-\frac{E}{R \cdot T}} \quad (1)$$

kde:

- $E$  – je aktivační energie [ $\text{J} \cdot \text{mol}^{-1}$ ],
- $A$  – pre-exponenciální faktor [ $\text{s}^{-1}$ ],
- $T$  – teplota uhlí [ $\text{K}$ ] a
- $R$  – univerzální plynová konstanta ( $R = 8,3145$ ) [ $\text{J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ ].

Experimentální měření [2] prokázalo, že teplotní závislost rychlostní konstanty má dvě fáze. Při nižších teplotách je průběh pomalý, po dosažení kritické teploty  $T_{cr}$  dochází k prudkému nárůstu rychlosti oxidace uhlí. Tuto skutečnost dokazuje převzatý obrázek 1, který představuje závislost rychlostní konstanty  $k$  [ $\text{s}^{-1}$ ] v logaritmických souřadnicích na teplotě ve tvaru  $1000/T$  [ $\text{K}^{-1}$ ]. Na základě měření byla vyhodnocena hodnota kritické teploty  $T_{cr} = 350,24[\text{K}] = 77,1[^\circ\text{C}]$ . Z uvedeného plyne, že aktivační energie i pre-exponenciální faktor mají v každé fázi jiné hodnoty, které byly získány z experimentálního měření. Tyto hodnoty jsou uvedeny v tabulce 1 a byly následně použity v numerické simulaci nízkoteplotní oxidace uhlí.



Obr. 1: Průběh rychlostní konstanty ( $\ln(k)$ ) na teplotě ( $1000/T$ ) [2]

Tab. 1: Aktivační energie  $E$  a pre-exponenciální faktor  $A$

Teplota	$T \leq T_{kr}$	$T \geq T_{kr}$
$E$ [kJ.mol <sup>-1</sup> ]	9,98	55,4
$A$ [s <sup>-1</sup> ]	0,00345	20600

### 3.2 Definování stechiometrické rovnice

Několik autorů se v minulosti snažilo stanovit stechiometrické rovnice oxidace uhlí s uvažováním nebo zanedbáním vlivu vlhkosti. Zjednodušené schéma oxidace uhlí podle studie [4], kdy produktem oxidace uhlí je pouze oxid uhličitý, je:

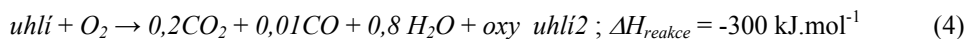


S ohledem na experimentálně zjištěnou skladbu oxidačních produktů ve sledovaném teplotním intervalu do teploty 200°C a za předpokladu, že na reakční vodu připadá dvakrát více spotřebovaného kyslíku, než na uvolnění oxidu uhličitého byla navržena následující dvě základní schémata [3]:

Pro  $T \leq T_{kr}$



Pro  $T \geq T_{kr}$



Zbytek spotřebovaného kyslíku připadá na tvorbu oxidu uhelnatého a tzv. „oxy\_uhlí“, což je tuhý zbytek.

## 4 MATEMATICKÉ MODELY NÍZKOTEPLTNÍ OXIDACE

### 4.1 Jednofázový matematický model

Jednofázový matematický model nízkoteplotní oxidace uhlí představuje zjednodušený model, který je založen na experimentálních datech definujících zdrojové členy plyných složek včetně množství tepla. Oblast částic uhlí je pojata jako porézní oblast s laminárním modelem proudění, charakterizovaná pórovitostí a permeabilitou, které vstupují do rovnice kontinuity, pohybových rovnic, rovnice energie a rovnic pro hmotnostní zlomky:

Rovnice kontinuity [5]

$$\frac{\partial \gamma p}{\partial t} + \frac{\partial (\gamma \rho u_j)}{\partial x_j} = S_{i'} \quad (6)$$

kde:

- $\rho$  – je hustota směsi [ $\text{kg.m}^{-3}$ ],
- $u_j$  – složka vektoru rychlosti [ $\text{m.s}^{-1}$ ],
- $\gamma$  – pórovitost oblasti [-] a
- $S_{i'}$  – zdrojový člen (spotřeba  $\text{O}_2$ , produkce  $\text{CO}_2, \text{CO}, \text{H}_2\text{O}$ ).

Pohybové rovnice [5]

$$\frac{\partial (\rho \gamma u_i)}{\partial t} + \frac{\partial (\rho \gamma u_i u_j)}{\partial x_j} = \frac{\partial \gamma p}{\partial x_i} + \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \mu \gamma \frac{\partial u_i}{\partial x_j} \right) + \frac{\mu}{\varepsilon} u_i \quad (7)$$

kde:

- $p$  – je statický tlak [Pa],
- $\mu$  – molekulová viskozita [ $\text{Pa.s}$ ] a
- $\varepsilon$  – je permeabilita porézní oblasti [ $\text{m}^2$ ].

Rovnice pro hmotnostní zlomek složky [5]

$$\frac{\partial (\rho \gamma Y_{i'})}{\partial t} + \frac{\partial (\rho \gamma \bar{u}_j Y_{i'})}{\partial x_j} = - \frac{\partial}{\partial x_i} (\gamma J_{j,i'}) + S_{i'} \quad (8)$$

kde:

- $Y_{i'}$  – je hmotnostní zlomek složky [ $\text{kg.kg}^{-1}$ ],
- $J_{j,i'}$  – difúzní tok [ $\text{kg.m}^{-2}\text{s}^{-1}$ ] a
- $S_{i'}$  – zdrojový člen (spotřeba  $\text{O}_2$ , produkce  $\text{CO}_2, \text{CO}, \text{H}_2\text{O}$ ),  
ve kterém je zahrnuta rychlost produkce složek v důsledku chemické reakce.

Tato rovnice bude řešena pro  $n-1$  složek, kde  $n$  je celkový počet chemických složek v systému. Součet hmotnostních zlomků složek musí být roven 1.

Rovnice energie [5]

$$\begin{aligned} \frac{\partial T}{\partial t} (\gamma \rho_g c_{pg} + (1-\gamma) \rho_s c_{ps}) + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho c_{pg} \gamma u_j T) = \gamma \frac{\partial}{\partial x_i} (\tau_{ji} u_j) + \\ + \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \lambda \gamma \frac{\partial T}{\partial x_j} \right) + \gamma \frac{\partial}{\partial x_j} (c_p T J_{j,i'}) + S_h \end{aligned} \quad (9)$$

kde:

- $T$  – je teplota [K],
- $\rho_{s,g}$  – hustoty uhlí a směsi plynů [ $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ ],
- $c_{ps,g}$  – měrné tepelné kapacity uhlí a směsi plynů [ $\text{J}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ ],
- $\lambda_{s,g}$  – tepelné vodivosti uhlí a směsi plynů [ $\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ ],
- $\lambda$  – efektivní tepelná vodivost [ $\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ ] a
- $S_h$  – zdrojový člen (množství uvolněného tepla z oxidace uhlí).

Zdrojový člen v rovnici pro hmotnostní zlomek kyslíku je odvozen z rychlosti reakce oxidace uhlí definované pomocí Arrheniovy rovnice:

$$S_{O_2} = -\rho Y_{O_2} A \cdot e^{-E_a/R \cdot T} \quad (10)$$

Zdrojové členy v rovnici pro hmotnostní zlomky ostatních plynných složek ( $\text{CO}_2, \text{CO}, \text{H}_2\text{O}$ ) jsou úměrné zdrojovému členu  $S_{O_2}$ . Jednotlivé konstanty v níže uvedených rovnicích vychází z rovnic (3) a (4):

$$S_{CO} = \text{const}_{CO} \cdot S_{O_2} \quad (11)$$

$$S_{CO_2} = \text{const}_{CO_2} \cdot S_{O_2} \quad (12)$$

$$S_{H_2O} = \text{const}_{H_2O} \cdot S_{O_2} \quad (13)$$

Zdrojový člen v rovnici energie je úměrný zdrojovému členu  $S_{O_2}$  a reakčnímu teplu  $\Delta H_{reakce}$ :

$$S_h = \Delta H_{reakce} \cdot S_{O_2} \quad (14)$$

## 4.2 Dvoufázový matematický model

K řešení nízkoteplotní oxidace byl použit dvoufázový Eulerův matematický model, který je nejkomplexnější ze všech vícefázových modelů. Hlavní předností tohoto modelu je možnost definování fází o různém skupenství, v tomto případě se jedná o plynnou a pevnou fázi. Plynná fáze je tvořena směsí plynů ( $\text{CO}_2, \text{CO}, \text{H}_2\text{O}, \text{O}_2, \text{N}_2$ ) a pevná fáze složkami (uhlí, oxy\_uhlí1, oxy\_uhlí2). Jak je uvedeno v předchozí kapitole, jednofázový model řeší soustavu základních bilančních rovnic (rovnice kontinuity, pohybové rovnice, rovnice energie a rovnice pro hmotnostní zlomky), zatímco dvoufázový model řeší stejnou soustavu rovnic pro každou fázi samostatně. Odlišnost spočívá pouze v modifikaci těchto rovnic molárním zlomkem jednotlivých fází a možností zadání zdrojových členů do jednotlivých fází. V našem případě zadáváme zdrojový člen v rovnici energie do pevné fáze (uhlí) a zdrojové členy pro spotřebu  $\text{O}_2$  a produkci  $\text{CO}_2, \text{CO}, \text{H}_2\text{O}$  do plynné fáze. Zatímco u jednofázového modelu je přestup tepla jen vedením-kondukcí u dvoufázového modelu probíhá přestup tepla z pevné fáze (uhlí) do pohybující se plynné fáze konvektivním způsobem a řídí se rovnicí přestupu tepla:

$$Q = \alpha \cdot S \cdot (t_s - t_f) \quad (15)$$

kde:

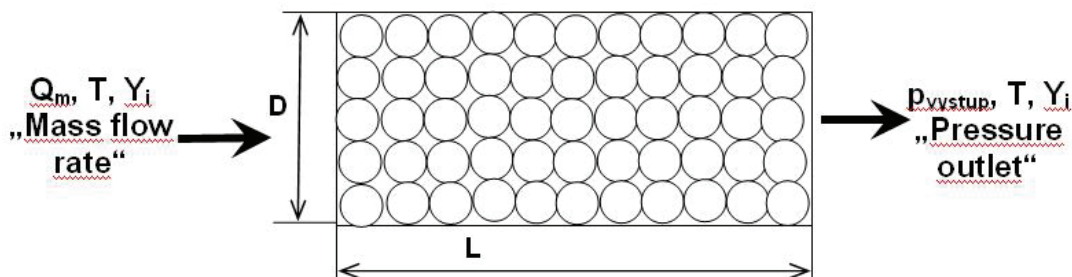
- $Q$  – je tepelný tok [W],
- $S$  – plocha uhlí [ $\text{m}^2$ ],
- $t_{s,f}$  – teplota pevné, plynné fáze [K] a
- $\alpha$  – součinitel přestupu tepla [ $\text{W}\cdot\text{m}^2\cdot\text{K}^{-1}$ ], který je funkcí Reynoldsového a Prandtlého čísla a pro jeho určení byl dle [5] použit vztah Ranz Marshall.

Výše charakterizované matematické modely byly následně řešeny v programu ANSYS Fluent 12.1.

## 5 VÝSLEDKY A DISKUZE K NUMERICKÉMU ŘEŠENÍ

### 5.1 Popis modelu, fyzikální vlastnosti

K numerické simulaci byl vytvořen 2D osově symetrický model reaktoru o rozměrech  $0,12 \times 0,07\text{m}$ , který byl použit při experimentu dle obr. 2. Na vstupu do reaktoru je definována konstantní hodnota hmotnostního průtoku vzduchu okrajovou podmínkou „mass flow rate“, hmotnostní zlomek  $O_2$ ,  $N_2$  a teplota, která se rovná střední teplotě plynné fáze uvnitř reaktoru  $Tr_{stř}$ . Hodnota teploty na vstupu se tedy mění v každém časovém kroku v závislosti na změně střední teploty uvnitř reaktoru v důsledku nízkoteplotní oxidace. Výstup z reaktoru je určen tlakovou okrajovou podmínkou „pressure outlet“.



Obr. 2: Matematický model experimentu (reaktoru) s okrajovými podmínkami

Hustota plynné směsi ( $CO_2$ ,  $CO$ ,  $H_2O$ ,  $O_2$ ,  $N_2$ ) je definována stavovou rovnicí pro ideální plyn, měrná tepelná kapacita, tepelná vodivost a viskozita plynné směsi užitím směšovacích zákonů [5]. Závislost mezi permeabilitou porézní oblasti  $\varepsilon$  a pórovitostí uhlé hmoty tvořené z kulových částic je dle [5] definována vztahem:

$$\varepsilon = \frac{d^2 \cdot \gamma^3}{150 \cdot (1 - \gamma)^2} \quad (16)$$

kde vstupní parametry mají hodnoty:

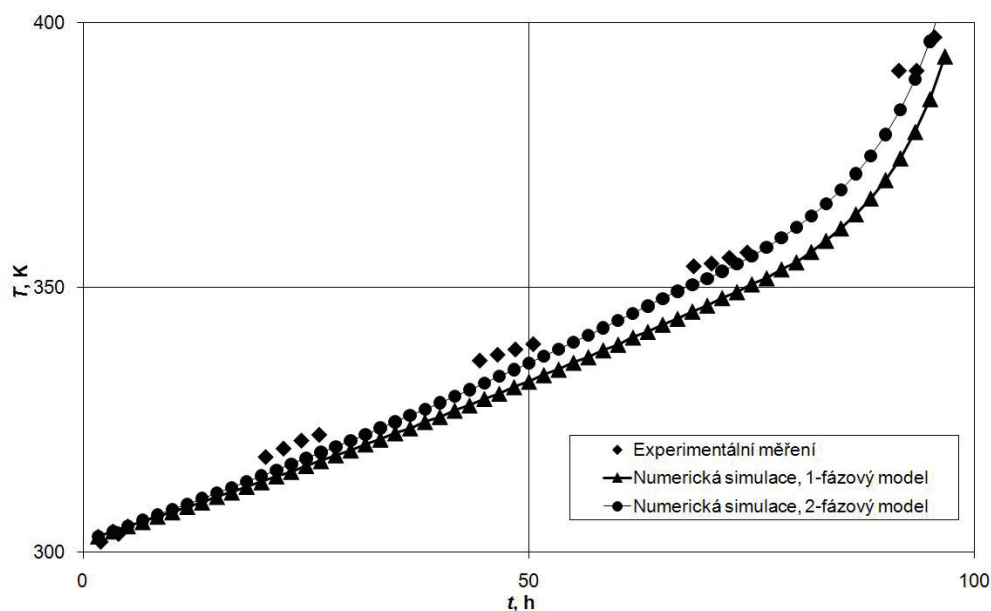
- $d$  – je průměr částic uhlí  $d = 0,0005\text{m}$  [m],
- $\gamma$  – pórovitost  $\gamma = 0,15$  [-] a tím je určena hodnota
- $\varepsilon$  – permeability  $\varepsilon = 2,08 \cdot 10^{-11}$  [ $\text{m}^2$ ].

### 5.2 Okrajové a počáteční podmínky

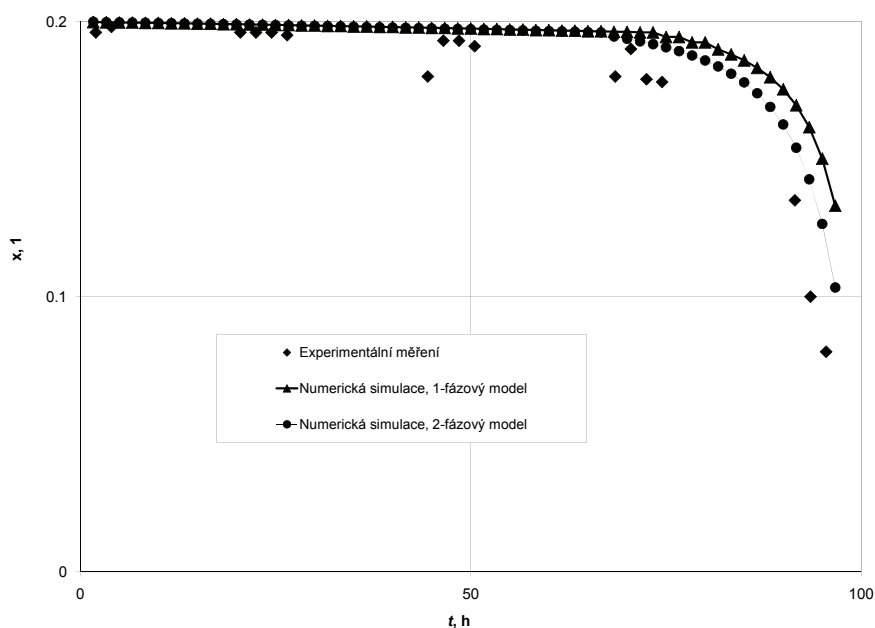
Na vstupu do oblasti naplněné uhlím je nastavena konstantní hodnota průtoku plynné směsi ( $CO_2$ ,  $CO$ ,  $H_2O$ ,  $O_2$ ,  $N_2$ )  $Q_m = 6,367562 \cdot 10^{-7} \text{ kg} \cdot \text{s}^{-1}$  a hmotnostního zlomku kyslíku  $Y_{O_2} = 0,23$  a dusíku  $Y_{N_2} = 0,77$ . Na výstupu z oblasti je definována tlaková okrajová podmínka s atmosférickým tlakem  $p = 101325\text{Pa}$ . Tepelný tok na stěnách oblasti (reaktoru) je nulový, jedná se o adiabatický děj. Počáteční teplota uhlí je  $T = 302\text{K}$ . Časový krok numerické simulace je  $\Delta t = 6000\text{s}$ .

### 5.3 Vyhodnocení numerické simulace v porovnání s experimentálním měřením

Výsledky numerické simulace jednofázového a dvoufázového matematického modelu vzhledem k experimentálnímu měření jsou porovnány pomocí průběhu střední teploty uhlí uvnitř reaktoru v závislosti na čase (obr.3) a průběhu molárního zlomku kyslíku na výstupu z reaktoru v závislosti na čase (obr.4). Celková doba experimentálního měření a numerické simulace je 95,5 h.



Obr. 3: Nárůst teploty uvnitř měřené oblasti



Obr. 4: Molární koncentrace kyslíku na výstupu z oblasti

V dalším vyhodnocení se porovnává střední hodnota molární koncentrace jednotlivých plynných složek na výstupu z reaktoru v čase  $t = 45\text{h}$  a  $t = 95,5\text{h}$  (Tab. 2). Chybějící hodnoty molárních zlomku v případě fyzikálního experimentu nejsou v publikaci [2] prezentovány.

Tab. 2: Střední hodnota molárního zlomku jednotlivých složek na výstupu z reaktoru v čase

Složka	1-fázový model		2-fázový model		Fyzikální experiment	
	čas $t = 45\text{h}$	čas $t = 95,5\text{h}$	čas $t = 45\text{h}$	čas $t = 95,5\text{h}$	čas $t = 45\text{h}$	čas $t = 95,5\text{h}$
O <sub>2</sub>	0,98	0,133	0,197	0,103	0,19	0,085
CO <sub>2</sub>	0,00108	0,0148	0,00109	0,0208	0,0015	0,025
CO	0	0,00093	0	0,00129		
H <sub>2</sub> O	0,00431	0,0592	0,00438	0,083		

## 6 ZÁVĚR

Z výsledků numerických simulací a experimentálního měření je patrná velmi dobrá shoda. Oba modely jsou významně závislé na přesném určení termokinetických vlastností uhlí. Vícefázový model z hlediska výpočtu je časově náročnější, ale umožňuje rozšířit řešení nízkoteplotní oxidace o vliv kondenzace vodní páry a odpařování vody a definování dalších fází a chemických reakcí.

Tyto 2 připravené matematické modely zohlední výpočet rozvoje nízkoteplotní oxidace uhlí v prostředí uhelné skládky se zahrnutím vlivu meteorologických podmínek, o kterých bylo zmíněno již v úvodu tohoto článku.

## PODĚKOVÁNÍ

Příspěvek byl realizován za finančního přispění Grantové agentury ČR, projekt 105/08/1414.

## LITERATURA

- [1] MICHALCOVÁ, V., BLEJCHAŘ, T. Numerická simulace vlivu atmosférické mezní vrstvy na tlakové změny na povrchu skládky uhlí. In *Dynamics of Civil Engineering and Transport Structures and Wind Engineering 2011*. Jasná pod Chopkom : Slovenská republika, 2011, pp. 39- 42. ISBN 978-80-554-0354-0.
- [2] CYGANKIEWICZ, J. Badanie skłonności polskich węgla do samozapalenia metodą testu adiabatycznego. In *Větrání a bezpečnost dolů*. Ostrava, VŠB-TU Ostrava: Česká republika, 2000, pp. 22-57.
- [3] TARABA, B. *Nízkoteplotní oxidace a samovznícování uhelné hmoty*. Interní zpráva v rámci řešení grantového projektu GAČR 105/08/1414. Ostravská univerzita v Ostravě: Ostrava, 2009.
- [4] LIMING, Y., SMITH, A. C. DFD modelling of spontaneous heating in largescale coal chamber. *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*. 2009, Nr. 22, pp. 426-433. ISSN 0950-4230
- [5] FLUENT: Fluent 12 - *User's guide*, Fluent Inc. 2007. VŠB-TU Ostrava. <URL:http://http://spc.vsb.cz/portal/cz/documentation/manual/index.php>.

## Oponentní posudek vypracoval:

Prof. Ing. Boleslav Taraba, CSc., Katedra chemie, Přírodovědecká fakulta, Ostravská univerzita v Ostravě.

Ing. Marek Zamazal, ArcelorMittal Ostrava a.s., Ostrava.